

日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

31.07.00

JP000/4F02

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 5月15日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-141286

出 願 人

Applicant (s):

株式会社ユアサコーポレーション

REC'D 14 SEP 2000

WIPO

PCT

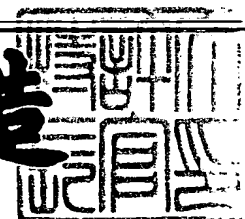
EKV

**PRIORITY  
DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2000年 9月 1日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2000-3069201

【書類名】 特許願  
 【整理番号】 P12006  
 【提出日】 平成12年 5月15日  
 【あて先】 特許庁長官 殿  
 【国際特許分類】 H01M 10/40  
 【発明者】

---

【住所又は居所】 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号 株式会社 ユ  
 アサ コーポレーション 内

【氏名】 井土 秀一

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号 株式会社 ユ  
 アサ コーポレーション 内

【氏名】 落合 誠二郎

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号 株式会社 ユ  
 アサ コーポレーション 内

【氏名】 中川 裕江

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号 株式会社 ユ  
 アサ コーポレーション 内

【氏名】 渡辺 俊行

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号 株式会社 ユ  
 アサ コーポレーション 内

【氏名】 紀氏 隆明

---

【特許出願人】

【識別番号】 000006688

【氏名又は名称】 株式会社 ユアサ コーポレーション

【代表者】 大坪愛雄

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 平成11年特許願第205528号

【出願日】 平成11年 7月21日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 035172

【納付金額】 21,000円

---

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 リチウム電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 少なくとも正極、負極及びセパレータからなる発電要素を有し、少なくともポリマーと電解液からなるゲル電解質が前記発電要素の少なくとも一部に用いられているリチウム電池において、前記電解液中のリチウム塩濃度が、電解液 1 リットルに対して 1.5～5 モルの範囲であることを特徴とするリチウム電池。

【請求項 2】 少なくともポリマーと電解液からなる前記ゲル電解質を構成するポリマーの重量分率は、該ポリマーの重量と該電解液の重量との和に対して 5～30 重量%であることを特徴とする請求項 1 記載のリチウム電池。

【請求項 3】 前記ゲル電解質は、電解液と、重合性官能基を分子鎖中に少なくとも 2 個以上有するモノマーと、の混合物を硬化させて得られたものである請求項 1 または 2 のいずれかに記載のリチウム電池。

【請求項 4】 前記リチウム塩が、 $\text{LiBF}_4$ である請求項 1 乃至 3 のいずれかに記載のリチウム電池。

【請求項 5】 前記電解液を構成する有機溶媒は、 $\gamma$ -ブチロラクトンを 50 重量%以上有していることを特徴とする請求項 1 乃至 4 のいずれかに記載のリチウム電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明はリチウム電池に関するもので、さらに詳しくは、リチウム電池の正極、負極またはセパレータに用いるゲル電解質の改良に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

近年、携帯電話、PHS、小型パーソナルコンピュータなどの携帯機器類は、エレクトロニクス技術の進展に伴って小型化、軽量化が著しく、これらの機器類に用いられる電源としての電池においても小型化、軽量化が求められている。

## 【 0 0 0 3 】

このような用途に期待できる電池の 1 つとしてリチウム電池があるが、既に実用化されているリチウム一次電池に加えて、リチウム二次電池の実用化、高容量化、長寿命化が求められている。

## 【 0 0 0 4 】

上記した種々のリチウム電池はそのイオン伝導体として電解液を使用しているため、いずれも肉厚の金属缶を使用した円筒形あるいは角形が中心であり、薄型形状のものが製造し難い。このため、従来の電解液に代えて固体電解質を用い、印刷技術を応用した製法により、リチウム一次電池においては薄い金属箔を用いた薄形形状のものも実用化されている。このような技術を応用し、リチウム二次電池においても、ゲル状電解質を用いた薄形形状の電池の実用化のために、従来から各種の研究開発がなされている。

## 【 0 0 0 5 】

円筒形あるいは角形リチウム二次電池の場合、正極、負極、およびセパレータからなる極群を円筒形あるいは角形の電槽に挿入した後、液体の電解質を注液するという工程を経て作製される。これに対し、ゲル電解質リチウム二次電池においては、正極と負極をゲル状の電解質を介して対向させた後、パッキングする方法で作製され、製造上の利点がある。しかし、このようなゲル電解質電池は、円筒形あるいは角形電池に比較して、高率充放電性能や低温性能が悪いという欠点があった。

## 【 0 0 0 6 】

この原因として、以下のような要因が挙げられる。すなわち、円筒形あるいは角形電池の場合、電解質が液体のため、電極およびセパレータ中のリチウムイオンの拡散が容易である。これに対し、ゲル電解質電池の場合、電解質がゲル状のため、該電解質に含まれるポリマーによりイオンの移動が束縛され、拡散速度が遅くなって高率充放電および低温充放電性能が劣る欠点があった。

## 【 0 0 0 7 】

そこで従来から、リチウムイオン伝導度を向上させたゲル電解質の代表的なものとして、ポリエチレンオキサ이드をポリマー骨格に用い、これにリチウム塩お

よび有機溶媒からなる電解液を加えたゲル電解質が広く検討されてきた。リチウム塩や有機溶媒との混合比を規定することにより、現在までに液系電解質に匹敵する  $1 \times 10^{-3} \text{ S/cm}$  オーダーのリチウムイオン伝導度を実現しており、このゲル電解質を用いたリチウム電池は、ほぼ実用化レベルに至っている。

## 【 0 0 0 8 】

## 【発明が解決しようとする課題】

しかし、上記したようなポリエチレンオキサイドを代表とするゲル電解質を用いたリチウム電池は、低率放電時には十分な電池性能を示すが、高率放電時には、今なおリチウムイオンの拡散が遅く、電池性能を十分なレベルに保持することが困難であるという問題点があった。

## 【 0 0 0 9 】

本発明は上記問題点に鑑みてなされたものであり、特殊な製造工程などを必要としなくてもゲル電解質のイオン伝導度を高いレベルに保持し、ゲル電解質中のリチウムイオンのスムーズな移動を実現することにより、高率放電時にも電池性能を十分なレベルに保持し、長寿命で安定した電池性能を得ることができるリチウム電池を提供することを目的としたものである。

## 【 0 0 1 0 】

## 【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するため、本発明は、少なくとも正極、負極及びセパレータからなる発電要素を有し、少なくともポリマーと電解液からなるゲル電解質が前記発電要素の少なくとも一部に用いられているリチウム電池において、前記電解液中のリチウム塩濃度が、電解液 1 リットルに対して 1.5 ～ 5 モルの範囲であることを特徴とするリチウム電池である。また、少なくともポリマーと電解液からなる前記ゲル電解質を構成するポリマーの重量分率は、該ポリマーの重量と該電解液の重量との和に対して 5 ～ 30 重量%であることを特徴としている。また、前記ゲル電解質は、電解液と、重合性官能基を分子鎖中に少なくとも 2 個以上有するモノマーと、の混合物を硬化させて得られたものであることを特徴としている。また、前記リチウム塩が、 $\text{LiBF}_4$  であることを特徴としている。また、前記電解液を構成する有機溶媒は、 $\gamma$ -ブチロラクトンを 50 重量%以上有して

いることを特徴としている。

#### 【 0 0 1 1 】

即ち、本発明者らは鋭意検討した結果、リチウム電池の電解液に通常用いられる塩濃度よりも、およそ 2 倍以上の高濃度のリチウム塩を溶解した電解液とポリマーからなるゲル電解質を用いたとき、良好な高率放電性能が得られることを見出し、本発明に到達した。即ち本発明は、少なくとも正極、負極、セパレータのいずれか 1 つ以上の中に含まれる電解液中のリチウム塩濃度が、電解液 1 リットルに対して 1 . 5 ~ 5 モルの範囲であり、ポリマーがポリマーと電解液の重量に対して 5 ~ 3 0 % であることを特徴とするリチウム電池である。

#### 【 0 0 1 2 】

前記ゲル電解質中に含まれるリチウム塩濃度は、電解液 1 リットルに対して 1 . 5 ~ 5 モル、好ましくは 2 ~ 4 モル、さらに好ましくは 2 ~ 3 モルである。1 . 5 モル未満ではリチウムイオン濃度が少なく拡散速度が小さい。5 モルを越える場合は高い塩濃度のため束縛を受けて、リチウムイオンの拡散が遅くなり、またリチウム塩の析出も起こりやすくなる。リチウムイオンの拡散が良好で、リチウム塩の析出が起こりにくい点で前記濃度範囲が好ましい。

#### 【 0 0 1 3 】

前記ゲル電解質中に含有させることのできるリチウム塩を形成するアニオンとしては、無機または有機のアニオンが挙げられる。これらのリチウム塩は必要に応じ、単独もしくは 2 種以上を併用して用いることができる。無機アニオンの例としては、例えば  $\text{BF}_4^-$ 、 $\text{PF}_6^-$ 、 $\text{ClO}_4^-$ 、 $\text{AsF}_6^-$ 、 $\text{SCN}^-$  などが挙げられる。有機アニオンの例としては、例えば  $\text{C}_n\text{F}_{2n+1}\text{SO}_3^-$  ( $n = 0 \sim 5$ )、 $\text{C}(\text{SO}_2\text{C}_n\text{F}_{2n+1})(\text{SO}_2\text{C}_m\text{F}_{2m+1})(\text{SO}_2\text{C}_p\text{F}_{2p+1})^-$  ( $n, m, p = 0 \sim 5$ )、 $\text{N}(\text{SO}_2\text{C}_n\text{F}_{2n+1})(\text{SO}_2\text{C}_m\text{F}_{2m+1})^-$  ( $n, m = 0 \sim 5$ )、 $\text{RCOO}^-$  などが挙げられる。これらのリチウム塩のうち、熱安定性が良好で、水分混入時の加水分解による HF の発生の問題が少ない点で  $\text{LiBF}_4$  が好ましい。

#### 【 0 0 1 4 】

前記ゲル電解質中に含まれる有機溶媒としては、例えばラクトン類 {  $\gamma$ -ブチロラクトン、 $\gamma$ -バレロラクトンなど }、鎖状エステル類 { 酢酸メチル、プロピ

オン酸メチル、プロピオン酸エチルなど)、炭酸エステル類 {エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ジエチルカーボネート、メチルエチルカーボネート、ジメチルカーボネート、ジフェニルカーボネートなど)、環状エーテル類 {テトラヒドロフラン、2-メチルテトラヒドロフラン、1, 3-ジオキソランなど)、鎖状エーテル類 {1, 2-ジメトキシエタン、エチレングリコールメチルエチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジエチルエーテル、重合度3以上のポリエチレングリコールジ(C1~C4)アルキルエーテル、プロピレングリコールジメチルエーテル、重合度2以上のポリプロピレングリコールジ(C1~C4)アルキルエーテルなど)、N-メチルオキサゾリジノン、スルフォラン類 {スルフォラン、2-メチルスルフォランなど)、ニトリル類 {アセトニトリルなど)、スルフォキシド類 {ジメチルスルフォキシドなど)、アミド類 {N, N-ジメチルホルムアミドなど)、ピロリドン類 {N-メチルピロリドンなど)などが挙げられる。これらの有機溶媒は、必要に応じて単独もしくは2種以上を併用して用いることができる。これらの有機溶媒のうち、誘電率が高く、蒸気圧が低く、引火性の低い点で、 $\gamma$ -ブチロラクトン、プロピレンカーボネート、エチレンカーボネートが好ましい。熱安定性の良好なLiBF<sub>4</sub>塩と組み合わせた時の高率放電特性が良好となる点で、 $\gamma$ -ブチロラクトンを50重量%以上含有させた有機溶媒がさらに好ましい。

## 【0015】

前記ゲル電解質中に含有させることのできるポリマーはポリマーと電解液の重量に対して5~30%であり、好ましくは10~25%であることが望ましい。ゲル電解質中に用いるポリマーは特に限定するものではないが、一般的には多少なりとも電解液に膨潤するものが好ましい。これらのポリマーにはアクリロイル系ポリマー、ポリフッカビニリデン、ポリアクリロニトリルなどがある。さらに重合性官能基を有し、電解液に溶解するモノマーを重合したものが望ましい。さらに言えば、前記ゲル電解質が、リチウム塩と、有機溶媒と、重合性官能基を分子鎖中に少なくとも2個以上有するモノマーとの混合物を、硬化させることにより得られるものであることが望ましい。

## 【0016】



前記重合性官能基を分子鎖中に 2 個以上有するモノマーの例としては、2 官能（メタ）アクリレート {エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、プロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、重合度 2 以上のポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、重合度 2 以上のポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリオキシエチレン／ポリオキシプロピレン共重合体のジ（メタ）アクリレート、ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、ヘキサメチレングリコールジ（メタ）アクリレートなど}、3 官能（メタ）アクリレート {トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、グリセリントリ（メタ）アクリレート、グリセリンのエチレンオキシド付加物のトリ（メタ）アクリレート、グリセリンのエチレンオキシド、プロピレンオキシド付加物のトリ（メタ）アクリレートなど}、4 官能以上の多官能（メタ）アクリレート {ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジグリセリンヘキサ（メタ）アクリレートなど} などが挙げられる。さらには化 1、化 2、化 3 に示した構造のモノマーを用いることができる。

## 【 0 0 1 7 】

本発明に用いる正極活物質としては  $\text{LiCoO}_2$  のようなコバルト系化合物、 $\text{LiNiO}_2$  のようなニッケル系化合物、 $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  のようなマンガン系化合物、チタン酸リチウムのようなチタン系化合物、酸化バナジウム系活物質のようなバナジウム系化合物、磷酸鉄系活物質のような鉄系化合物などがあるがここに上げたものに限定するものではない。負極活物質としてはリチウム金属、リチウム合金、グラファイトなどの炭素質化合物があるがこれらに限定されるものではない。

## 【 0 0 1 8 】

本発明により、以下のような作用が期待できる。まず第 1 に、ゲル電解質中のリチウム塩濃度が高いことにより、高率充放電時にリチウムイオンの移動に伴う分極が緩和され、充放電特性が良好となる。

## 【 0 0 1 9 】

第 2 に、正極、負極、セパレータ中に含まれるリチウム塩濃度が有機溶媒に対して高まることにより、電解質中の有機溶媒の蒸気圧が下がり、溶剤の揮発に

よる引火が抑えられる。

# 【 0 0 2 0 】

したがって、本発明は、以上の作用が相乗的に得られるため、信頼性に優れ、かつ、初期容量や高率充放電性能、低温性能、安全性などに優れたリチウム電池を容易に提供することができるものである。

# 【 0 0 2 1 】

## 【発明の実施の形態】

以下に本発明の詳細について、実施例により説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

# 【 0 0 2 2 】

## （実施例 1）

図 1 に本発明のリチウム電池の断面図を示す。1 は正極活物質であるコバルト酸リチウムを主成分とした正極合剤であり、アルミ箔からなる正極集電体 3 上に塗布されてなる。また、2 は負極活物質であるカーボンを主成分とした負極合剤であり、銅箔からなる負極集電体 4 上に塗布されてなる。また、前記正極合剤 1 と負極合剤 2 は、ゲル電解質からなるセパレータ 5 を介して積層されている。さらに、このようにして積層した極群をアルミラミネートフィルム 6 で覆い、四方を熱溶着により封止し、リチウム電池としたものである。

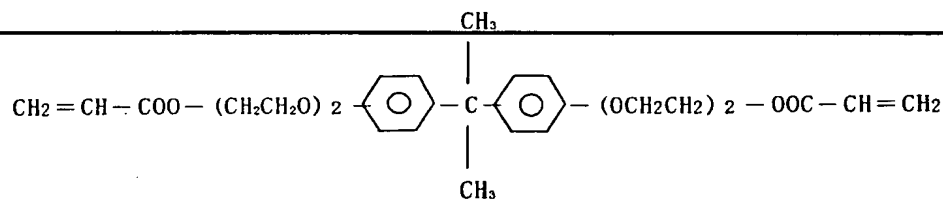
# 【 0 0 2 3 】

次に、上記構成のリチウム電池の製造方法を説明する。はじめに、正極合剤 1 は以下のようにして得た。まず、正極活物質であるコバルト酸リチウムと、導電剤であるアセチレンブラックと、さらに結着剤であるポリフッ化ビニリデンの N-メチルー 2-ピロリドン溶液を混合したものを正極集電体 3 であるアルミ箔上に塗布した後、乾燥し、合剤厚みが 0.1 mm となるようにプレスすることにより、正極活物質シートを得た。次に、γ-ブチロラクトン 1 リットルに 2.2 モルの  $\text{LiBF}_4$  を溶解した電解液に（化 1）で示される構造を持つアクリレートモノマーを電解液とモノマーの合計重量に対して 15% 混合した電解質溶液を作製した。これに前記正極活物質シートを浸漬し、電解質溶液を真空含浸した。続いて、電解質溶液から正極活物質シートを取り出し、電子線照射によりモノマー

を重合させてポリマーを形成させた。以上の工程により正極合剤 1 を得た。また、負極合剤 2 は負極活物質であるカーボンを用い、負極集電体 4 に銅箔を用いる以外は前記正極合剤 1 と同様の方法により得た。

【 0 0 2 4 】

【化 1】

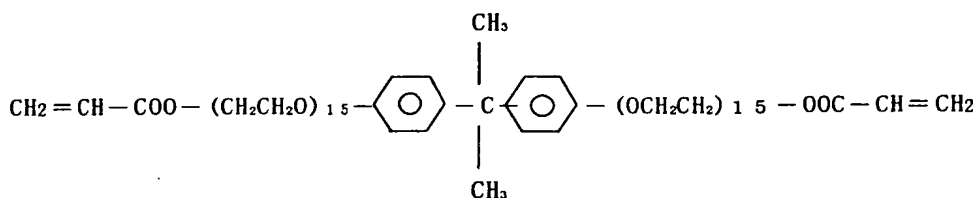


【 0 0 2 5 】

セパレータ 5 は以下のようにして得た。まず、有機溶媒としての  $\gamma$ -ブチロラクトン 1 リットルに 2. 2 モルのリチウム塩である  $\text{LiBF}_4$  を溶解した電解液に、(化 2) で示される構造を持つ 2 官能アクリレートモノマーを電解液とモノマーの合計重量に対して 1 0 % 混合し、正極 1 上に塗布した後、電子線照射によりモノマーを重合させてポリマーを形成させ、ゲル電解質セパレータとした。

【 0 0 2 6 】

【化 2】



【 0 0 2 7 】

以上のような原料および製法により電池を作製し、これを本発明電池 A 1 とした。

【 0 0 2 8 】

(実施例 2)

$\gamma$ -ブチロラクトン 1 リットルに 1. 5 モルのリチウム塩である  $\text{LiBF}_4$  を溶解した電解液を正極、負極及びセパレータの製造工程に用いたこと以外は、本発明の電池 A 1 と同様にして電池を作成し、これを本発明電池 A 2 とした。

【 0 0 2 9 】

(実施例 3)

γ-ブチロラクトン 1 リットルに 3 モルのリチウム塩である  $\text{LiBF}_4$  を溶解した電解液を正極、負極及びセパレータの製造工程に用いたこと以外は、本発明の電池 A 1 と同様にして電池を作成し、これを本発明電池 A 3 とした。

【 0 0 3 0 】

(実施例 4)

γ-ブチロラクトン 1 リットルに 4 モルのリチウム塩である  $\text{LiBF}_4$  を溶解した電解液を正極、負極及びセパレータの製造工程に用いたこと以外は、本発明の電池 A 1 と同様にして電池を作成し、これを本発明電池 A 4 とした。

【 0 0 3 1 】

(実施例 5)

γ-ブチロラクトン 1 リットルに 5 モルのリチウム塩である  $\text{LiBF}_4$  を溶解した電解液を正極、負極及びセパレータの製造工程に用いたこと以外は、本発明の電池 A 1 と同様にして電池を作成し、これを本発明電池 A 5 とした。

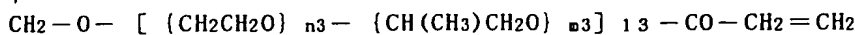
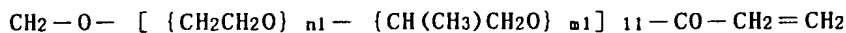
【 0 0 3 2 】

(実施例 6)

セパレータ 5 の作成に使用する 2 官能アクリレートモノマーに代えて、(化 3) の構造を有する 3 官能アクリレートモノマー (重量平均分子量、約 8 0 0 0) を用いたこと以外は本発明電池 A 1 と同様にして電池を作成し、これを本発明電池 C 1 とした。

【 0 0 3 3 】

【化 3】



(式中、 $n1$ 、 $n2$ 、 $n3$ 、 $m1$ 、 $m2$ 、 $m3$ は 0 以上の整数)

【 0 0 3 4 】

(実施例 7)

$\gamma$ -ブチロラクトン 1 リットルに 3 モルのリチウム塩である  $\text{LiBF}_4$  を溶解した電解液を正極、負極及びセパレータの製造工程に用いたこと以外は、本発明の電池 C 1 と同様にして電池を作成し、これを本発明電池 C 2 とした。

【 0 0 3 5 】

(実施例 8)

正極活物質シートに真空含浸する電解質溶液中のモノマーの含有量が、電解液とモノマーとの合計重量に対して 5 % であり、セパレータに用いた電解質溶液中のモノマーの含有量が、電解液とモノマーとの合計重量に対して 5 % であること以外は、電池 A 1 と同様の方法で作成した電池を本発明電池 E 1 とした。

【 0 0 3 6 】

(実施例 9 ~ 1 5)

実施例 8 と同様に、正極活物質シートに真空含浸する電解質溶液中のモノマーの含有量と、セパレータに用いた電解質溶液中のモノマーの含有量を表 4 のように変化させ、E 2 から E 8 までの本発明電池を作成した。

【 0 0 3 7 】

(比較例 1)

$\gamma$ -ブチロラクトン 1 リットルに 1. 2 モルのリチウム塩である  $\text{LiBF}_4$  を溶解した電解液を正極、負極及びセパレータの製造工程に用いたこと以外は、本発明の電池 A 1 と同様にして電池を作成し、これを比較電池 B 1 とした。

【 0 0 3 8 】

(比較例 2)

$\gamma$ -ブチロラクトン 1 リットルに 6 モルのリチウム塩である  $\text{LiBF}_4$  を溶解した電解液を正極、負極及びセパレータの製造工程に用いたこと以外は、本発明の電池 A 1 と同様にして電池を作成し、これを比較電池 B 2 とした。

【 0 0 3 9 】

(比較例 3)

$\gamma$ -ブチロラクトン 1 リットルに 1. 2 モルのリチウム塩である  $\text{LiBF}_4$  を

溶解した電解液を正極、負極及びセパレータの製造工程に用いたこと以外は、本発明の電池 C 1 と同様にして電池を作成し、これを比較電池 D 1 とした。

【 0 0 4 0 】

(比較例 4)

正極活物質シートに真空含浸する電解質溶液中のモノマーの含有量が、電解液とモノマーとの合計重量に対して 4 % であり、セパレータに用いた電解質溶液中のモノマーの含有量が、電解液とモノマーとの合計重量に対して 4 % であること以外は、電池 A 1 と同様の方法で作成した電池を本発明電池 F 1 とした。

【 0 0 4 1 】

(比較例 5)

電解質溶液中のモノマー含有率をいずれも 3 5 % とした事以外は本発明電池 F 1 と同様にして電池を作成し、比較電池 F 2 とした。

【 0 0 4 2 】

次に、これらの本発明電池 A 1 ～ A 5 および比較電池 B 1、B 2 について、20℃の温度下で 1 mA (10 時間率相当) の電流で終止電圧 4. 2 V まで充電した後、放電電流 20 mA (0. 5 時間率相当) の高率放電で 2. 7 V まで放電し、放電容量を測定した。結果を表 1 に示す。

【 0 0 4 3 】

【表 1】

	電池名	リチウム塩濃度 (モル/リットル)	20℃、20mA 放電容量 (mAh)
実施例 1	A 1	2. 2	4. 0
実施例 2	A 2	1. 5	2. 5
実施例 3	A 3	3. 0	4. 5
実施例 4	A 4	4. 0	3. 0
実施例 5	A 5	5. 0	1. 8
比較例 1	B 1	1. 2	1. 2
比較例 2	B 2	6. 0	0. 3

【 0 0 4 4 】

表 1 の結果から明らかなように、本発明の電池 A 1 ～ A 5 は、比較電池 B 1、B 2 と比較して、放電容量が高い。

## 【 0 0 4 5 】

次に、これらの本発明電池 A 1、A 2 および比較電池 B 1 について、温度  $-20^{\circ}\text{C}$  の低温下で  $1\text{ mA}$ （10 時間率相当）の電流で終止電圧  $4.2\text{ V}$  まで充電した後、放電電流  $2\text{ mA}$ （5 時間率相当）の定電流で  $2.7\text{ V}$  まで放電し、低温での放電容量を測定した。結果を表 2 に示す。

## 【 0 0 4 6 】

【表 2】

	電池名	リチウム塩濃度 (モル/リットル)	$-20^{\circ}\text{C}$ 、 $2\text{ mA}$ 放電容量 (mAh)
実施例 1	A 1	2. 2	7. 8
実施例 2	A 2	1. 5	6. 3
比較例 1	B 1	1. 2	1. 0

## 【 0 0 4 7 】

表 2 の結果から明らかな様に、本発明の電池 A 1、A 2 は比較電池 B 1 に比較して、低温において非常に高い放電容量が得られている。

## 【 0 0 4 8 】

次に、これらの本発明電池 C 1、C 2 および比較電池 D 1 について、 $20^{\circ}\text{C}$  の温度下で  $1\text{ mA}$ （10 時間率相当）の電流で終止電圧  $4.2\text{ V}$  まで充電した後、放電電流  $20\text{ mA}$ （0.5 時間率相当）の高率放電で  $2.7\text{ V}$  まで放電し、放電容量を測定した。結果を表 3 に示す。

## 【 0 0 4 9 】

【表 3】

	電池名	リチウム塩濃度 (モル/リットル)	$20^{\circ}\text{C}$ 、 $20\text{ mA}$ 放電容量 (mAh)
実施例 6	C 1	2. 2	7. 8
実施例 7	C 2	3. 0	6. 6
比較例 3	D 1	1. 2	1. 6

## 【 0 0 5 0 】

表 3 の結果から明らかなように、本発明の電池 C 1、C 2 は比較電池 D 1 と比較して、放電容量が非常に高い。このことから、本発明はゲルを構成するモノマーが異なっても適用できることがわかる。

## 【 0 0 5 1 】

次に、これらの本発明電池 E 1 から E 8 および比較電池 F 1、F 2 について、2 0 ℃ の温度下で 1 m A （ 1 0 時間率相当）の電流で終止電圧 4 . 2 V まで充電した後、放電電流 2 0 m A （ 0 . 5 時間率相当）の高率放電で 2 . 7 V まで放電し、放電容量を測定した。結果を表 4 に示す。

## 【 0 0 5 2 】

【表 4】

	電池名	電極中 モノマー濃度 (%)	セパレータ中 モノマー濃度 (%)	リチウム塩濃度 (モル／リットル)	2 0 ℃、2 0 m A 放電容量 (m A h)
実施例 1	A 1	1 5	1 0	2 . 2	4 . 0
実施例 8	E 1	5	5	2 . 2	4 . 6
実施例 9	E 2	1 5	5	2 . 2	4 . 1
実施例 10	E 3	3 0	5	2 . 2	2 . 0
実施例 11	E 4	5	1 0	2 . 2	4 . 5
実施例 12	E 5	3 0	1 0	2 . 2	1 . 9
実施例 13	E 6	5	3 0	2 . 2	2 . 5
実施例 14	E 7	1 5	3 0	2 . 2	3 . 0
実施例 15	E 8	3 0	3 0	2 . 2	1 . 8
比較例 4	F 1	4	4	2 . 2	0 (短絡)
比較例 5	F 2	3 5	3 5	2 . 2	1 . 3

## 【 0 0 5 3 】

表 4 から明らかなように、本発明の電池 A 1、E 1 ～ E 8 は比較電池 F 1、F 2 に比較して放電容量が良いことがわかる。電極中とセパレータ中のモノマー濃度を変化させ、4 % から 3 5 % まで変化させると、4 % ではセパレータが機械的に弱く短絡し、電極からは液がしみ出て、実用上問題がある。3 5 % ではポリマーが多すぎて、イオンの拡散が遅くなってハイレート特性が悪くなり、実用上問題がある。



【 0 0 5 4 】

なお、本実施例においては、セパレータだけでなく、電極中の電解質にもゲル電解質を用いたが、本発明は電極中電解質の形態を規制するものではない。従って、正極および負極のいずれか一方、あるいは両方ともが電極中の電解質に液状電解質を用いた場合にも、セパレータ中の電解質がゲル電解質である場合には、本発明の効果は有効に得ることができる。

---

【 0 0 5 5 】

セパレータとしては実施例で説明した方法だけでなく、不織布などの多孔性基材に電解質溶液を含浸し、電子線を照射するなどの方法で作成したものを電極に重ねて使用してもよい。

【 0 0 5 6 】

【発明の効果】

上記したとおりであるから、本発明によれば、特殊な製造工程などを必要としなくても初期容量および高率放電性能、低温特性、サイクル寿命に優れたリチウム電池を提供することができるものである。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

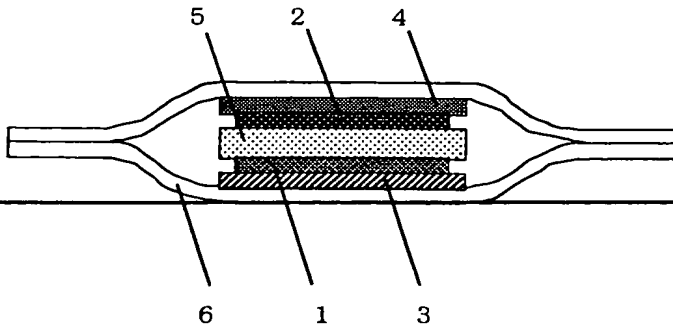
本発明のリチウム電池の断面図である。

【符号の説明】

- 1 正極合剤
  - 2 負極合剤
  - 3 正極集電体
  - 4 負極集電体
  - 5 セパレータ
  - 6 アルミラミネートフィルム
-

【書類名】 図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【目的】 特に高率充放電性能、低温充放電特性に優れたゲル電解質リチウム電池を提供する。

【構成】 少なくとも正極、負極及びセパレータからなる発電要素を有し、少なくともポリマーと電解液からなるゲル電解質が前記発電要素の少なくとも一部に用いられているリチウム電池において、前記電解液中のリチウム塩濃度が、電解液 1 リットルに対して 1.5 ～ 5 モルの範囲であり、前記ゲル電解質を構成するポリマーの重量分率は、該ポリマーの重量と該電解液の重量との和に対して 5 ～ 30 重量%であるリチウム電池とすることで、上記目的を達成できる。

---

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 6 6 8 8 ]

---

1. 変更年月日	1 9 9 9 年 7 月 2 日
[変更理由]	住所変更
住 所	大阪府高槻市古曽部町二丁目 3 番 2 1 号
氏 名	株式会社ユアサコーポレーション

---